

ESTUDIOS TEÓRICO-EXPERIMENTALES DE DESCARGAS EN CÁTODO HUECO

F.A. Manzano y V. D'Accurso

Centro de Investigaciones en Láseres y Aplicaciones (CEILAP)
Instituto de Investigaciones Científicas y Técnicas de las Fuerzas Armadas (CITEFA) – CONICET
Zufriategui 4380 (1603) Villa Martelli, Pcia. de Buenos Aires
e-mail: fmanzano@citefa.gov.ar, vdacurso@citefa.gov.ar

Se determinaron por medio de fluorescencia inducida por láser (LIF), absorción, efecto optogalvánico e interferometría las tasas de intercambio de población por colisiones electrónicas entre los niveles $2p_j$, las poblaciones de los niveles $1s_i$, el coeficiente de difusión ambipolar y la temperatura del gas en una descarga de luminiscencia negativa en Neón. Los coeficientes asociados a los procesos mencionados fueron incluidos en un modelo desarrollado por nosotros que basado en ecuaciones de balance, describe la descarga y permite predecir las señales optogalvánicas. Se comprobó que en descargas desarrollándose a igual presión y corriente de sostenimiento e irradiando en la misma transición pero en cátodos huecos de diferente tamaño, las señales optogalvánicas difieren en su evolución temporal. Dichas variaciones se asocian a cambios del valor del coeficiente de difusión ambipolar y de la temperatura del gas. Se verificó experimentalmente que las correcciones al cálculo de las tasas de intercambio entre las poblaciones $2p_j$ por impulso clásico efectuadas anteriormente (V. D'Accurso et al, Anales AFA, Vol.5 (1993)) en base a mediciones de LIF para algunos niveles deben ser realizadas aun para aquellos niveles energéticamente más separados.

Rates for the Neon $2p_j$ population exchange by electron collisions, the population densities of the $1s_i$ levels, the ambipolar-like diffusion coefficient and the gas temperature in a glow discharge are measured by laser induced fluorescence (LIF), absorption, optogalvanic effect and interferometry. The coefficients were included in a model based on rate equations developed by us that describe the discharge and predict the optogalvanic signals. Modifications in the optogalvanic signal evolution obtained by irradiating a given transition in similar discharges (same pressure and current) but different hollow cathode sizes are associated to changes in the ambipolar-like diffusion coefficient and gas temperature. The corrections for the $2p_j$ -population exchange rates proposed by us based on the measure of LIF for some levels with respect to the values obtained by the classical impulse approximation (V. D'Accurso et al, Anales AFA, Vol.5 (1993)) were verified experimentally for all $2p_j$ levels, inclusive those energetically more separate.

Introducción

Las técnicas ópticas constituyen una potente herramienta para el estudio de plasmas de átomos ó moléculas y en particular la técnica optogalvánica permite de manera sencilla y con gran sensibilidad detectar los constituyentes del plasma en sus distintos estados excitados y determinar parámetros fundamentales de la descarga. Por lo tanto, es deseable contar con un modelo que describa correctamente la descarga y las señales optogalvánicas (OG) para obtener información sobre estados excitados de difícil acceso por otros métodos y utilizar la técnica para la detección de muy bajas concentraciones de componentes del plasma.

En publicaciones anteriores⁽¹⁻³⁾, hemos desarrollado y mejorado un modelo teórico que describe la dinámica del efecto optogalvánico en descargas de luminiscencia negativa en Neón dentro de un cátodo hueco iluminado con pulsos láser. De la resolución de las ecuaciones de balance del modelo se obtienen los valores de las poblaciones, en estado estacionario, de las dos primeras configuraciones excitadas ($1s_i$, $2p_j$ con $1 \leq i \leq 4$ y $1 \leq j \leq 10$, notación de Paschen) del Neón y al incluir en las ecuaciones un término que representa la iluminación láser se obtuvieron la evolución de las poblaciones y las señales optogalvánicas. En dicho modelo se tiene en cuenta, entre otros procesos, el intercambio de población por colisiones con electrones de los niveles $2p_j$ de la segunda configuración excitada. También se tiene en cuenta la mezcla de poblaciones por colisiones átomo-

átomo, que depende de la temperatura del gas, y el coeficiente de difusión ambipolar que es afectado por la geometría del cátodo hueco utilizado.

En este trabajo se presentan las mediciones, por medio de distintas técnicas ópticas, de las tasas de intercambio de población entre niveles electrónicos excitados y diversos parámetros del plasma creado en una descarga de cátodo hueco en Neón para corrientes entre 5-20 mA y a una presión de 5 Torr. Estos valores se introdujeron en el modelo que describe la descarga y sus resultados se comparan con medidas experimentales encontrándose una buena concordancia entre los mismos. Además, se comparan las señales OG para distintas lámparas.

Medición del coeficiente de difusión de cargas:

La migración simultánea y en direcciones opuestas de un ion y un electrón en el campo eléctrico efectivo existente dentro del cátodo hueco es conocida como difusión ambipolar (D_a), siendo éste el proceso de pérdidas de cargas más importante en descargas de luminiscencia negativa y el que domina los tiempos de recuperación de la corriente a los valores estacionarios. El valor del coeficiente de difusión ambipolar está determinado principalmente por el tiempo promedio que tarda el ion (partícula más pesada) en llegar a la superficie del cátodo, por ende, dicho coeficiente depende de la geometría y el tamaño del cátodo hueco, es decir, de la lámpara particular utilizada. El valor de este coeficiente puede ser medido por el efecto OG seleccionando

adecuadamente la transición a excitar. Esta elección debe hacerse teniendo en cuenta que en descargas de luminiscencia negativa la corriente de sostenimiento es dominada por las poblaciones de los niveles $1s_i$ ⁽²⁾ y por lo tanto la evolución de las cargas generadas en base a la alteración de las poblaciones de dichos niveles será fuertemente afectada por los diversos procesos de recuperación, generalmente lentos, a los valores estacionarios.

En cambio, cuando se producen cargas variando las poblaciones de los niveles $2p_j$, la evolución de la corriente está relacionada sólo con la excitación y las pérdidas debido a la difusión ambipolar. Esto se debe al fuerte bombeo desde los $1s_i$ por electrones que permite recuperar más rápidamente (~ 100 ns) los valores de equilibrio de los $2p_j$ y a la menor población de esto (10^8 at/cm³) respecto de los $1s_i$ (10^{11} at/cm³). Por esta razón, se excitó con un pulso láser ($\tau_p = 5$ ns) la transición $2p_2 \rightarrow 4s_1''$ ($\lambda = 596,5$ nm) y se registró la evolución de la variación de la corriente (Fig. 1). El decaimiento consta de una exponencial rápida asociada al coeficiente de difusión

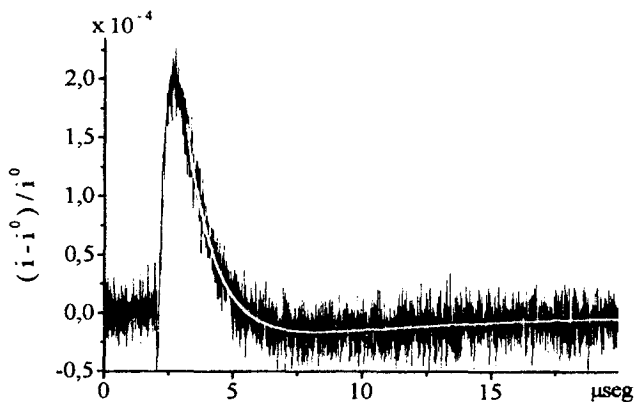


Fig. 1. Señal OG para la transición $2p_2 \rightarrow 4s_1''$. Trazo blanco: ajuste con dos exponenciales.

ambipolar y otra lenta debida a una pequeña perturbación de las poblaciones de los niveles $1s_i$ a causa de la disminución del decaimiento $2p_2 \rightarrow 1s_i$. Estas determinaciones fueron realizadas sobre un cátodo hueco cilíndrico de 7 mm de longitud y 2,5 mm de diámetro en el rango de corriente 9 a 16,5 mA (Fig. 2). Para 15 mA se obtiene un valor de $D_{a1} = 720.000$ s⁻¹ que difiere notablemente del valor medido $D_{a2} = 210.000$ s⁻¹ en una lámpara con un cátodo hueco de 4 mm de diámetro, de la misma longitud y en las mismas condiciones de funcionamiento.

Medición de la temperatura del gas:

La temperatura del gas en el interior del cátodo hueco determina la magnitud del intercambio de población por colisiones átomo-átomo, principalmente entre los niveles $1s_i$. Como estas poblaciones dominan la corriente de la descarga, el conocimiento de su valor es importante para el modelado.

La medida se realizó iluminando con la radiación emitida por la lámpara, previamente filtrada por un monocromador, un Fabry-Perot plano-plano ($d = 8,8$ mm, $F \cong 50$) alojado en un recipiente evacuable. Con un osciloscopio digital se registró simultáneamente la

variación de la transmisión del Fabry-Perot al variar la presión en el recipiente y la señal proporcionada por un transductor de presión (Baratron, MKS mod. 122AA).

La variación de presión permitió barrer tres rangos espectrales libres, determinándose la temperatura del gas midiendo el ancho de cada pico para la transición $2p_1 \rightarrow 1s_2$ ($\lambda = 585,2$ nm). De estas mediciones se obtuvo un valor de $T_g = 2.150$ K para una corriente de 15 mA y su variación para corrientes en el rango de 6–18 mA es graficada en la Fig. 2.

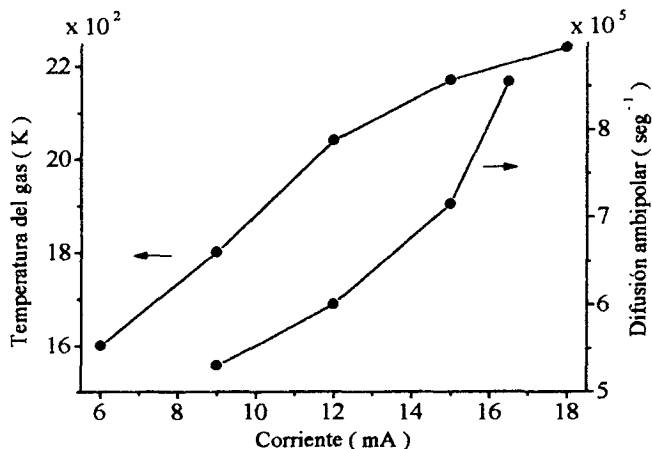


Fig. 2. Coeficiente de difusión y temperatura del gas vs. corriente

Determinación de tasa de intercambio entre las poblaciones de los niveles $2p_j$:

El intercambio de las poblaciones de los niveles $1s_i$ se realiza directamente por las colisiones átomo-átomo consideradas anteriormente e indirectamente a través de los niveles $2p_j$. Este último proceso se produce por colisiones electrón-átomo excitado en $1s_i$ que provocan una transición $1s_i \rightarrow 2p_j$ luego de la cual ocurre una redistribución de población entre los niveles $2p_j$ por colisiones con electrones y una posterior relajación fluorescente a los niveles $1s_i$. El proceso de intercambio de población en $2p_j$ cobra importancia cuando se excita una transición $1s_i \rightarrow 2p_j$ desde algún $1s_i$ por irradiaciones con un pulso láser porque determina la magnitud y la rapidez con que se verán afectadas las poblaciones de los otros $1s_i$ y en consecuencia la evolución de la señal OG.

Para realizar la medida del intercambio en $2p_j$ se llevó a cabo una experiencia de fluorescencia inducida que consistió en excitar consecutivamente con un láser de colorantes pulsado desde algún $1s_i$ cada uno de los diez niveles $2p_j$ midiéndose, para cada irradiación, las variaciones de intensidad de fluorescencia desde todos los niveles $2p_j$. Las señales de fluorescencia inducida fueron detectadas por un fotomultiplicador ($\tau_{\text{trappeda}} < 1$ ns) a través de un monocromador y, luego de ser promediadas en un osciloscopio digital, transferidas a una computadora. Para suprimir la radiación láser residual se realizó la diferencia entre éste valor y la medida realizada con la descarga apagada. Las intensidades de fluorescencia estacionaria fueron medidas en las mismas condiciones obturando la radiación láser. Con el fin de poder eliminar la respuesta instrumental y el ángulo sólido subtendido por la lámpara se refirió la intensidad de cada fluorescencia inducida a la

de su fluorescencia estacionaria y para obtener una medida del coeficiente de intercambio se dividieron estos valores por el valor relativo del incremento de fluorescencia del nivel bombeado.

Las transiciones excitadas fueron seleccionadas para maximizar el bombeo de población, mientras que para la

detección de las fluorescencias inducidas se eligieron aquellas transiciones que tuvieran la mayor probabilidad de decaimiento espontáneo y el menor acople con el nivel $1s_i$ bombeado. Los resultados tomando como base 100 para el nivel bombeado y leídos horizontalmente se resumen en la Tabla I.

TABLA I. Intercambio $P_i \rightarrow P_j$
(snd: señal no detectable dentro de la sensibilidad experimental)

	P_1	P_2	P_3	P_4	P_5	P_6	P_7	P_8	P_9	P_{10}
P_1	100	0.136	0.93	0.37	0.119	0.085	0.068	snd	snd	snd
P_2	snd	100	0.17	0.17	0.1	0.032	snd	snd	snd	snd
P_3	snd	0.072	100	6.5	0.92	0.045	0.13	0.018	0.003	snd
P_4	0.02	0.33	21.7	100	8.75	0.33	1.11	0.13	0.029	0.017
P_5	snd	0.09	1	3.4	100	0.13	0.67	0.034	0.013	snd
P_6	0.021	0.033	0.078	0.099	0.1	100	3.1	0.66	0.077	0.078
P_7	snd	snd	0.087	0.11	0.22	1.1	100	0.73	0.118	0.11
P_8	snd	snd	0.06	0.045	0.057	0.2	0.66	100	2.8	1.7
P_9	snd	0.068	0.06	0.039	0.058	0.14	0.23	2.7	100	5.1
P_{10}	snd	snd	0.05	0.03	0.06	0.026	0.04	0.05	0.1	100

Las medidas de fluorescencia inducida confirman el orden de magnitud de la corrección de los valores calculados por impulso clásico de la tasa de intercambio de población entre los niveles $2p_j$ por impacto electrónico que había sido postulada en un trabajo anterior⁽¹⁾. En dicho trabajo, la corrección había sido deducida a partir de la medidas de fluorescencia inducida de tres decaimientos al excitar la transición $1s_5 \rightarrow 2p_4$ y extendiendo la corrección a los intercambios entre todos los niveles $2p_j$.

Del análisis de la variación del valor de la tasa en función de la diferencia de energía entre niveles surge que el tratamiento de esferas duras no es válida para este proceso. Debe resaltarse el pequeño valor de las tasas de intercambio entre el nivel $2p_1$ y los otros niveles, que sumado al hecho que dicho nivel está conectado ópticamente sólo con el $1s_2$, redundan en una señal OG débil y sumamente rápida como las observadas en el laboratorio.

Modelado de la descarga

Los datos obtenidos fueron incluidos en un modelo⁽²⁾ que describe una descarga de luminiscencia negativa, consistente en ecuaciones de balance para las densidades de población de la primera ($1s_i$) y segunda ($2p_j$) configuraciones excitadas del Neón, densidades de electrones y de iones e imponiendo la neutralidad de carga. Dichas ecuaciones tienen en cuenta los principales mecanismos de excitación y desexcitación atómica así como los procesos de recombinación de cargas,

atrapamiento de radiación y difusión de electrones y átomos en estados metaestables. Al resolver el sistema de ecuaciones se obtienen las condiciones estacionarias y al introducir un término representando el bombeo láser se obtienen las señales OG.

Los resultados obtenidos para las poblaciones de los niveles $1s_i$ en estado estacionario se compararon con las medidas realizadas en el laboratorio.

Las densidades de población se determinaron a partir de la medición de la atenuación de un haz láser reflejado en el fondo del cátodo hueco (long. = 0,7 cm). La intensidad del pulso láser es detectada por un fotomultiplicador ($\tau_{\text{trapped}} < 1$ ns) a través de un monocromador y promediada en un osciloscopio digital. La absorción se calculó a partir de la diferencia de las intensidades reflejadas medidas con y sin descarga. Se comprobó previamente, fuera de resonancia con alguna transición, que la intensidad de la reflexión no variaba en los dos estados de la lámpara. El láser de colorante fue cuidadosamente alineado para obtener un ancho de línea de emisión similar al de la línea emitida por la lámpara y su intensidad atenuada para evitar la saturación de la transición. Los valores obtenidos a una corriente de 15 mA fueron $15 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$, $13 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$, $6 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ y $4 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ para $1s_5$, $1s_4$, $1s_3$, y $1s_2$ respectivamente con un error del orden del 15%, los cuales coinciden con los resultados del cálculo. La mayor discrepancia se encuentra en el valor predicho para $1s_5$ que podría deberse a los valores utilizados para el coeficiente de intercambio de población de átomos en los estados $1s_i$.

El efecto de cambios geométricos de los electrodos sobre las señales OG se estudió utilizando lámparas similares con cátodos huecos de diferentes diámetros ($\phi_1=0,25\text{cm}$ y $\phi_2=0,4\text{cm}$) funcionando con la misma presión y a la misma corriente y excitando en la misma transición atómica. Sintonizando el láser en resonancia con la transición $1s_5 \rightarrow 2p_4$ se obtienen las señales OG de la Fig.3. Se puede apreciar que la señal para la primera lámpara es más rápida que para la segunda y que conserva la forma general. Un comportamiento similar fue observado para la transición $1s_2 \rightarrow 2p_1$.

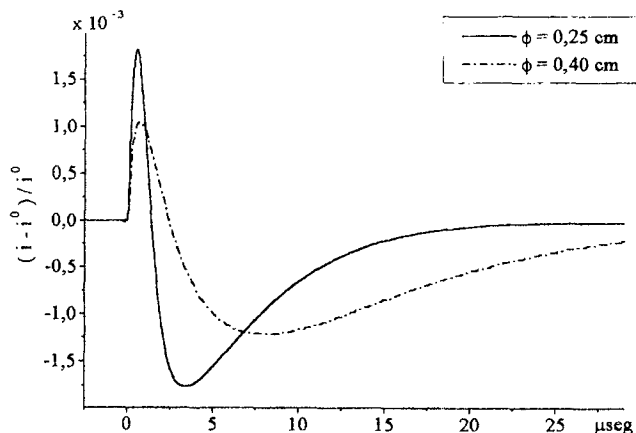


Fig.3. Señal OG experimental para dos diferentes diámetros del cátodo.

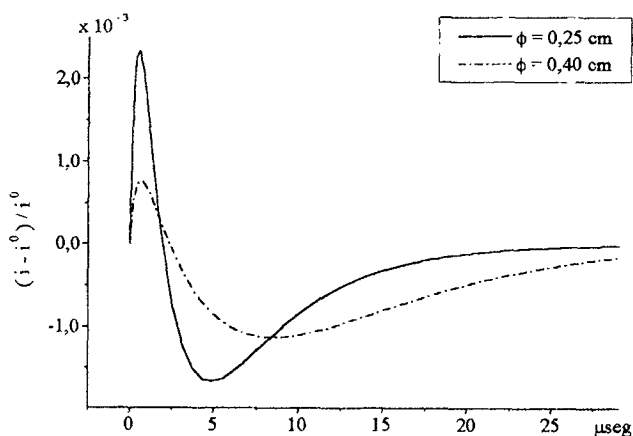


Fig.4. Señal OG teórica calculadas para dos diferentes diámetros del cátodo.

El coeficiente de difusión y la temperatura del gas medidos para el cátodo de menor diámetro fueron $D_{a1} = 720.000 \text{ s}^{-1}$ y $T_{g1} = 2.150 \text{ K}$ respectivamente, mientras que para el de mayor diámetro se midió $D_{a2} = 210.000 \text{ s}^{-1}$ y $T_{g2} = 1.500 \text{ K}$. Todas las medidas fueron realizadas a 15 mA .

En la Fig.4 se presentan las señales OG teóricas calculadas con los pares de valores mencionados, las que muestran la misma variación de la evolución al variar D_a que la medida en el laboratorio presentando, además, una buena concordancia con las señales OG experimentales.

Por medio del modelo hemos comprobado que la variación del valor del coeficiente de difusión es la causa principal del cambio en la respuesta temporal de la descarga siendo mucho menor el efecto de T_g .

Conclusiones

Comprobamos que el modelo elaborado con la introducción de los coeficientes medidos predice correctamente las señales OG generadas al excitar cualquier transición entre la primera y la segunda configuraciones excitadas del Neón. Asimismo, hemos comprobado que el modelo es aplicable para distintas lámparas de cátodo hueco a condición de conocer el valor del coeficiente de difusión ambipolar para el cual describimos un método de medición.

Identificamos que los cambios en la rapidez de las señales OG en lámparas de distinta geometría están asociados fundamentalmente a cambios en el coeficiente de difusión ambipolar.

Las medidas de fluorescencia inducida por láser confirman el orden de magnitud de la corrección a aplicar a los valores calculados por impulso clásico de la tasa de intercambio de población entre los niveles $2p_j$ por impacto electrónico que había sido postulada en un trabajo anterior.

Confirmamos que no es aplicable el modelo de impulso clásico para el cálculo de las tasas de intercambio de población entre niveles $2p_j$.

Referencias:

- [1] - V. D'Accurso, F.A. Manzano, V.B. Slezak, y H.O. Di Rocco, *Anales AFA93*, 5(1993)211.
- [2] - V.B. Slezak, V. D'Accurso and F.A. Manzano, *J.Opt.Soc.Am. B*, 13(1996)2701.
- [3] - V. D'Accurso, F.A. Manzano and V.B. Slezak, *Appl.Phys.B*, 63(1996)375.